

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Yoshihiro AKASAKA, et al.

GAU:

SERIAL NO: New Application

EXAMINER:

FILED: Herewith

FOR: LIQUID FUEL CELL DEVICE

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number _____, filed _____, is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §120**.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §119(e)**:
Application No. _____ Date Filed _____
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of **35 U.S.C. §119**, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

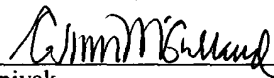
| <u>COUNTRY</u> | <u>APPLICATION NUMBER</u> | <u>MONTH/DAY/YEAR</u> |
|----------------|---------------------------|-----------------------|
| Japan | 2002-285569 | September 30, 2002 |

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. _____ filed _____
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number _____
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. _____ filed _____; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s) _____
☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Marvin J. Spivak

Registration No. 24,913

C. Irvin McClelland
Registration Number 21,124

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 05/03)

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2002年 9月30日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-285569

[ST.10/C]:

[JP2002-285569]

出 願 人

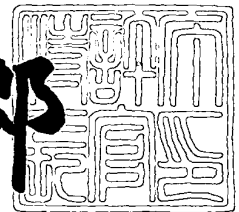
Applicant(s):

株式会社東芝

2003年 2月21日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3009703

【書類名】 特許願

【整理番号】 A000201795

【提出日】 平成14年 9月30日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明の名称】 液体燃料電池デバイス

【請求項の数】 6

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝研
究開発センター内

【氏名】 赤坂 芳浩

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝研
究開発センター内

【氏名】 梅 武

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝研
究開発センター内

【氏名】 大図 秀行

【特許出願人】

【識別番号】 000003078

【氏名又は名称】 株式会社 東芝

【代理人】

【識別番号】 100058479

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴江 武彦

【電話番号】 03-3502-3181

【選任した代理人】

【識別番号】 100084618

【弁理士】

【氏名又は名称】 村松 貞男

【選任した代理人】

【識別番号】 100068814

【弁理士】

【氏名又は名称】 坪井 淳

【選任した代理人】

【識別番号】 100092196

【弁理士】

【氏名又は名称】 橋本 良郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100091351

【弁理士】

【氏名又は名称】 河野 哲

【選任した代理人】

【識別番号】 100088683

【弁理士】

【氏名又は名称】 中村 誠

【選任した代理人】

【識別番号】 100070437

【弁理士】

【氏名又は名称】 河井 将次

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011567

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1



【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 液体燃料電池デバイス

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 燃料極、この燃料極に対向して配置された酸化剤極、および前記燃料極と酸化剤極により挟持された電解質層を備える液体燃料電池本体と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給システムを具備し、該液体燃料供給システムは、濃度が調整された液体燃料を収容しこれを前記燃料極側に供給する第 1 のタンクと、高濃度液体燃料を収容しこれを前記第 1 のタンクに供給する第 2 のタンクを備え、前記第 1 のタンクに、液体燃料を前記燃料極側に送液する第 1 の内部送液機構が設けられ、前記第 1 の内部送液機構は、前記第 1 のタンクの外部に設けられ、かつ前記第 1 の内部送液機構とは物理的に結合されていない第 1 の外部駆動機構により駆動されることを特徴とする液体燃料電池デバイス。

【請求項 2】 前記第 1 の内部送液機構は、第 1 の送液チューブと、この第 1 の送液チューブを膨張／圧縮させることにより液体燃料を送液する第 1 のチューブ駆動手段を含むことを特徴とする請求項 1 に記載の液体燃料電池デバイス。

【請求項 3】 前記第 1 の内部送液機構と前記第 1 の外部駆動機構は、磁気カップリングされることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の液体燃料電池デバイス。

【請求項 4】 前記第 2 のタンクに、液体燃料を前記第 1 のタンクに送液する第 2 の内部送液機構が設けられ、前記第 2 の内部送液機構は、前記第 2 のタンクの外部に設けられ、かつ前記第 2 の内部送液機構とは物理的に結合されていない第 1 の外部駆動機構により駆動されることを特徴とする請求項 1 ないし 3 のいずれか 1 項に記載の液体燃料電池デバイス。

【請求項 5】 前記第 2 の内部送液機構は、第 2 の送液チューブと、この第 2 の送液チューブを膨張／圧縮させることにより液体燃料を送液する第 2 のチューブ駆動手段を含むことを特徴とする請求項 4 に記載の液体燃料電池デバイス。

【請求項 6】 前記第 2 の内部送液機構と前記第 2 の外部駆動機構は、磁気カップリングされることを特徴とする請求項 4 または 5 に記載の液体燃料電池デバイス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、液体燃料電池デバイスおよびこれに使用される液体燃料タンクに係り、特に、小型化しても比較的長時間連続発電が可能な液体燃料電池デバイスに関する。

【0002】

【従来の技術】

液体燃料電池は、単独の発電装置としては効率が高いことから最近注目されている。液体燃料電池は、リン酸型液体燃料電池、熔融炭酸塩型液体燃料電池、固体電解質型液体燃料電池、アルカリ性電解液型液体燃料電池等の液体燃料としてガスを使用する液体燃料電池と、メタノール液体燃料電池、ヒドラジン液体燃料電池等の液体燃料として液体を使用する液体燃料電池とに大別される。これらの液体燃料電池は、主に電力用発電機や大型機器を駆動するための動力源としての利用を対象にしているため、ガスや液体の液体燃料、または酸化剤ガスを電池内に導入するためのコンプレッサやポンプ等が必要であるが、燃料として液体燃料を用いる燃料電池において、液体燃料を毛管力で電池内に導入し、かつ、電池内で液体燃料を気化する燃料気化部を別途形成し反応速度改善を図った燃料電池が有用である（例えば、特許文献1参照）。

【0003】

一方、社会的な動向として、OA機器、オーディオ機器、無線機器等の各種機器は、半導体技術の発達と共に小型化され、さらに携帯性が要求されるようになっている。このような要求を満足するための発電源としては、簡便な一次電池や二次電池等が使用されている。しかし、一次電池や二次電池は、機能上使用時間に制限があり、このような電池を用いたOA機器等では当然使用時間が限定される。これらの電池を使用した場合、電池の放電が終った後に、電池を交換してOA機器等を駆動することはできるものの、一次電池ではその重量に対して使用時間が短く、携帯機器には不向きである。また、二次電池では放電終了後充電できるという利点を有する半面、充電のために電源が必要で使用場所が制限されるの

みならず、充電に時間がかかるという欠点がある。特に、二次電池を内蔵した〇 A 機器等では、電池の放電が終っても電池を交換することが困難なため、機器の使用時間の制限は免れない。このように、各種小型機器を長時間駆動するためには、従来の一次電池や二次電池に基づく技術では対応が難しく、より長時間の作動に向けた電池が要求されている。

【 0 0 0 4 】

このような問題の一つの解決策として、上述したような液体燃料電池がある。液体燃料電池は、液体燃料と酸化剤を供給するだけで発電することができるという利点を有するだけでなく、液体燃料を交換すれば連続して発電できるという利点を有しているため、小型化が出来れば消費電力が小さい〇 A 機器等の小型機器の駆動に極めて有利なシステムといえる。

【 0 0 0 5 】

【特許文献 1】

特開平 1 0 - 2 7 8 7 5 9 号公報

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、液体燃料電池を小型化して携帯性をも持たせようとした場合、液体燃料電池自体の小型化に伴い、種々の付帯機器、特に液体燃料電池に液体燃料を供給するため液体燃料タンクを含む液体燃料供給系統も小型化しなければならない。液体燃料供給系統、特に液体燃料タンクが小型化されると、当然に、1 の液体燃料タンクからの液体燃料供給による連続発電時間は短縮され、頻繁な液体燃料タンクの交換が必要となる。かかる状況は特に液体燃料電池の場合に多い。

【 0 0 0 7 】

また、液体燃料を供給するタイプの燃料電池では液体燃料タンク内に外部から液体燃料の供給に用いるギヤ等の駆動用機構を用いているものがあるが、この場合、外部からタンクへの接続部での液シールを設けることが必要となるとともに、経時劣化により液体の漏れ出しにより安定した出力が得られない問題が発生していた。

【 0 0 0 8 】

従って、本発明は、小型化しても比較的長時間の連続発電が可能であるとともに、液シールを設けることなく液体燃料の漏洩を防止し得る液体燃料電池デバイスを提供することを目的とする。

【 0 0 0 9 】

【課題を解決するための手段】

本発明によれば、燃料極、この燃料極に対向して配置された酸化剤極、および前記燃料極と酸化剤極により挟持された電解質層を備える液体燃料電池本体と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給システムを具備し、該液体燃料供給システムは、濃度が調整された液体燃料を収容しこれを前記燃料極側に供給する第 1 のタンクと、高濃度液体燃料を収容しこれを前記第 1 のタンクに供給する第 2 のタンクを備え、前記第 1 のタンクに、液体燃料を前記燃料極側に送液する第 1 の内部送液機構が設けられ、前記第 1 の内部送液機構は、前記第 1 のタンクの外部に設けられ、かつ前記第 1 の内部送液機構とは物理的に結合されていない第 1 の外部駆動機構により駆動されることを特徴とする液体燃料電池デバイスが提供される。

【 0 0 1 0 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明をより詳しく説明する。

【 0 0 1 1 】

本発明の液体燃料電池デバイスは、液体燃料電池本体と、液体燃料電池本体の燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給システムを具備する。液体燃料電池本体は、燃料極、この燃料極に対向して配置された酸化剤極、および前記燃料極と酸化剤極により挟持された電解質層を備える。

【 0 0 1 2 】

図 1 は、本発明の種々の態様において使用され得る液体燃料電池本体の基本的構造を示す概略断面図である。図 1 において、液体燃料電池本体 1 0 は、電解質層 1 0 1 を備え、この電解質層 1 0 1 の一方の面には、燃料極（アノード） 1 0 2 が設けられ、電解質層 1 0 1 の他方の対向面には、酸化剤極（カソード） 1 0

3 が設けられている。燃料極 1 0 2 は、導電性基体 1 0 2 a と、その上に設けられた触媒層 1 0 2 b を備える。他方、酸化剤極 1 0 3 は、導電性基体 1 0 3 a と、その上に設けられた触媒層 1 0 3 b を備える。燃料極 1 0 2 および酸化剤極 1 0 3 は、それぞれ、その触媒層 1 0 2 b および 1 0 3 b が電解質層 1 0 1 に接するように配置されている。

【 0 0 1 3 】

電解質層 1 0 1 は、プロトン伝導性ポリマー電解質により構成することができる。そのようなプロトン伝導性ポリマー電解質としては、スルホン酸基を有するフッ素樹脂系のイオン交換樹脂（例えば、デュポン社製ナフィオン（登録商標））を使用することができる。

【 0 0 1 4 】

燃料極 1 0 2 の導電性基体 1 0 2 a は、液体燃料透過性のものであり、例えば導電性材料の多孔質体で構成することができる。他方、酸化剤極 1 0 3 の導電性基体 1 0 3 a は、酸化剤ガス透過性のものであるが、同様に導電性材料の多孔質体で構成することができる。また、燃料極 1 0 2 の触媒層 1 0 2 b と酸化剤極 1 0 3 の触媒層 1 0 3 b は、いずれも、白金系触媒、特に燃料極は P t - R u 系触媒により構成することができる。

【 0 0 1 5 】

例えば、カーボン粒子に白金系触媒を担持させ、それらカーボン担持白金系触媒粒子をバインダーを用いて導電性基体（例えば、カーボンペーパーやカーボンクロス）上に塗布し、乾燥することにより、燃料極 1 0 2 および酸化剤極 1 0 3 を作製することができる。

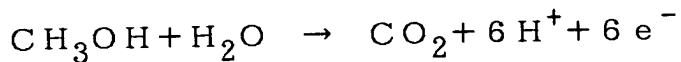
【 0 0 1 6 】

燃料極 1 0 2 を覆うように、本発明の液体燃料供給システムから送られる液体燃料を燃料極 1 0 2 に直接供給する液体燃料供給セパレータ 1 0 4 が設けられ、他方酸化剤極 1 0 3 を覆うように、酸化剤ガスを酸化剤極 1 0 3 に供給する酸化剤ガス供給セパレータ 1 0 5 が設けられている。既知のように、液体燃料供給セパレータ 1 0 4 には、液体燃料流路（図示せず）が設けられ、酸化剤ガス供給セパレータ 1 0 5 には、酸化剤ガス流路（図示せず）が設けられている。また、液

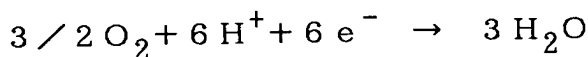
体燃料供給セパレータ104には、液体燃料の導入ポート104aと、これと反対側に液体燃料の反応生成物の排出ポート104bが設けられ、酸化剤ガス供給セパレータ105には、酸化剤ガスの導入ポート105aが設けられ、これと反対側に酸化剤ガスの反応生成物の排出ポート105bが設けられている。なお、セパレータ104とセパレータ105は、それぞれ、集電体としても作用するものであるから、導電性材料で形成される。

【0017】

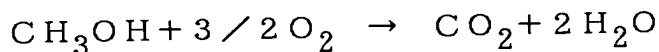
次に、液体燃料としてメタノール（+水）を、酸化剤ガスとして酸素ガスを例にとり、電極反応を説明すると、燃料極（アノード）側では、



なる反応が生起し、酸化剤極（カソード）側では、



なる反応が生起する。全反応は、



となる。

【0018】

すなわち、燃料極102に供給された液体燃料（メタノール+水）は、触媒層102bの触媒によって酸化され、プロトンが取り出されるとともに、電子が取り出される。取り出されたプロトンは電解質層101を通じて酸化剤極103側に伝導される。他方、酸化剤極103側では、電解質層101を通じて伝導されたプロトンが外部回路を通じて流れてきた電子および酸化剤ガス（酸素や空気など）と反応して水になる反応が、触媒層103bの触媒上で進行する。かかる反応が起こる過程で取り出される電子が外部回路を流れることにより発電が起こり、外部負荷を駆動させることができる。燃料極側の反応生成物ガスである二酸化炭素は、過剰な液体燃料とともに、排出ポート104bから系外へ排出され、酸化剤極側の液体反応生成物である水は、過剰な酸化剤ガスとともに排出ポート105bから系外へ排出される。

【0019】

さて、本発明の液体燃料電池デバイスにおいて、液体燃料電池本体の燃料極に

液体燃料を供給するための液体燃料供給システムは、濃度が調整された液体燃料を収容しこれを（セパレータ 1 0 4 を通して）燃料極側に供給する第 1 のタンクと、高濃度液体燃料を収容しこれを第 1 のタンクに供給する第 2 のタンクを備える。

【 0 0 2 0 】

図 2 は、かかる液体燃料供給システムを液体燃料電池本体とともに備える本発明の第 1 の実施の形態に係る液体燃料電池デバイスを示す概略構成図である。

【 0 0 2 1 】

図 2 に示す液体燃料デバイスは、上記液体燃料電池本体 1 0 のような液体燃料電池本体と液体燃料供給システムを備えるものであって、液体燃料供給システムは、液体燃料電池本体 1 0 の液体燃料導入ポート 1 0 4 a に接続される第 1 のタンク 2 0 と第 1 のタンク 2 0 に接続される第 2 のタンク 3 0 を具備する。

【 0 0 2 2 】

第 1 のタンク 2 0 は、濃度が調整された液体燃料を収容し、その液体燃料を液体燃料電池本体 1 0 の液体燃料導入ポート 1 0 4 a を介して液体燃料電池本体 1 0 の燃料極 1 0 2 （図 1 参照）に供給するものである。第 2 のタンク 3 0 は、高濃度液体燃料（例えば、濃度 9 9 ～ 1 0 0 % 未満のメタノール液）を収容し、これを第 1 のタンク 2 0 に供給するものである。第 1 のタンク 2 0 と第 2 のタンク 3 0 は、導管 L 1 により連通されている。第 2 のタンク 3 0 は、第 1 のタンク 2 0 に対し、交換可能なように、着脱自在に接続されることが好ましい。

【 0 0 2 3 】

第 1 のタンク 2 0 は、燃料極での電極反応に適した濃度に調整した液体燃料（例えば濃度 2 M のメタノール水溶液）を収容するものであり、第 2 のタンク 3 0 から供給される高濃度液体燃料を希釈して濃度調整するために、濃度調整機構を有し得る。図 2 に示す実施の形態では、この濃度調整機構は、希釈液（例えば、水）を収容する希釈液タンク 4 0 と、流量調整弁 V 1 0 を備え、第 1 のタンク 2 0 に連通する導管 L 1 とを備える。第 2 のタンク 3 0 から間欠的にまたは連続的に供給される高濃度液体燃料を、流量調整弁 V の開閉制御により希釈液タンク 4 0 から間欠的または連続的に導入される希釈液により、所定の濃度に調整する。

【 0 0 2 4 】

第 1 のタンク 2 0 および第 2 のタンク 3 0 は、耐薬品性（耐食性）を考慮すると、ステンレス（S U S 3 0 4、3 1 6 等）、チタン、アルミニウム等の金属、フッ素樹脂（P T F E 等）、硬質塩化ビニル樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、メチルペンテン樹脂、ポリウレタンのような熱可塑性樹脂、メラミン樹脂等の熱硬化性樹脂、ブタジエンゴム、スチレンゴム、ブチルゴム、エチレン・プロピレンゴム、天然ゴム、フッ素ゴム（F K M、F P M 等）等のゴム等の耐薬品性（耐食性）に優れた材料で形成することが望ましい。これら材料のなかでも、ステンレス、フッ素樹脂、ブタジエンゴム、スチレンゴム、ブチルゴム、エチレン・プロピレンゴム、天然ゴムが好ましい。

【 0 0 2 5 】

第 1 のタンク 2 0 には、その収容する濃度調整液体燃料を液体燃料電池本体に移送するための送液機構が設けられている。従来、送液機構は、第 1 のタンク 2 0 内に設けられた送液チューブと、この送液チューブを介して液体燃料を送給する送液ポンプと、タンク 2 0 の外部に設けられ、送液ポンプに液密シールを介して接続する送液ポンプ駆動機構（ギヤ等）からなるものであった。しかしながら、かかる送液機構では、液密シールを設けることが必要となる上に、液密シールの経時劣化により液体燃料が漏出して、安定な電池出力が得られないことがある。

【 0 0 2 6 】

そこで、本発明では、この送液機構を、液体燃料を前記燃料極側に送液する第 1 の内部送液機構と、この第 1 の内部送液機構を駆動するための、第 1 のタンクの外部に設けられ、かつ前記第 1 の内部送液機構とは物理的に結合されていない第 1 の外部駆動機構とを備えるように構成している。

【 0 0 2 7 】

より具体的には、図 2 に示すように、第 1 のタンク 2 0 内に設けられ、一端が液体燃料電池本体 1 0 の液体燃料導入ポートに連通するように接続された送液チューブ 5 1 と、同じく第 1 のタンク 2 0 内に設けられ、回転することにより送液チューブ 5 1 を繰り返し膨張・圧縮してチューブ 5 1 の他端から濃度調整液体燃

料を吸引・移送するための送液チューブ駆動部 5 2 と、第 1 のタンク 2 0 の外部に設けられ、送液チューブ駆動部 5 2 とは非接触状態で駆動部 5 2 を回転駆動させるための回転駆動機構 5 3 とによって構成することが好ましい。回転駆動機構 5 3 による送液チューブ駆動部 5 2 の回転駆動は、当該技術分野でよく知られているマグネットカップリング（例えば、（株）東芝製ラジアル型マグネットカップリング R シリーズ）を用いて行うことができる。例えば、回転駆動機構 5 3 を回転モータ 5 3 1 と、この回転モータ 5 3 1 に軸支された回転部材 5 3 2 とにより構成する。そして、送液チューブ駆動部 5 2 と回転部材 5 3 2 とを互いに磁気カップリングし得る材料で形成する。磁気カップリング性材料としては、Fe-B-Nd 系、Sm-Co 系、Sm-Fe-N 系、Fe-Co 系、Pt-Fe 系、フェライト系の各材料を例示することができる。

【 0 0 2 8 】

モータ 5 3 1 の駆動により回転駆動された回転部材 5 3 2 から非接触状態でその駆動力が送液チューブ駆動部 5 2 に伝達され、送液チューブ駆動部 5 2 が回転駆動され、送液チューブ 5 1 を繰り返し膨張・圧縮し、送液チューブ 5 1 から液体燃料導入ポート 1 0 4 a を介して液体燃料電池本体 1 0 の燃料極側へ濃度調整液体燃料が供給される。

【 0 0 2 9 】

図 2 に示すように、同様の構成の液体燃料送液機構を第 2 のタンク 3 0 にも設けることが好ましい。すなわち、第 2 のタンク 3 0 に設けられた液体燃料送液機構は、第 2 のタンク 3 0 内に設けられ、一端が導管 L 2 に連通するように接続された送液チューブ 7 1（送液チューブ 5 1 に相当）と、同じく第 2 のタンク 3 0 内に設けられ、回転することにより送液チューブ 7 1 を繰り返し膨張・圧縮してチューブ 7 1 の他端から濃度調整液体燃料を吸引・移送するための送液チューブ駆動部 7 2（送液チューブ駆動部 5 2 に相当）と、第 2 のタンク 3 0 の外部に設けられ、送液チューブ駆動部 7 2 とは非接触状態で駆動部 7 2 を回転駆動させるための回転駆動機構 7 3（回転駆動機構 5 3 に相当）とによって構成されている。回転駆動機構 7 3 は、回転モータ 7 3 1（回転モータ 5 3 1 に相当）と、この回転モータ 7 3 1 に軸支された回転部材 7 3 2（回転部材 5 3 2 に相当）とによ

り構成される。

【0030】

また、第1のタンク20内に設けられた送液チューブ51には、液体燃料の流れ方向から見て後流端部に、逆止弁CV1を設けることが好ましい。これら逆止弁CV1は、液体燃料電池本体における燃料極側での電極反応により発生する二酸化炭素ガスの第1のタンク20内への逆流を防止するものである。この逆止弁を設けることにより、二酸化炭素ガスが液体燃料タンク側に逆流することによる液体燃料の供給および電池反応に対する妨害を阻止することができ、長時間にわたり安定した電池出力を得ることができる。また、逆止弁CV1は、濃度調整液体燃料の第1のタンク20内への逆流をも防止し得るので、これを設けることにより第1のタンク20において安定した濃度調整を行うことができるようになる。

【0031】

同様の逆止弁CV2を第2のタンク30内の送液チューブにも設けることが好ましい。逆止弁CV2は、高濃度液体燃料の第2のタンク30内への逆流を防止し得るので、これを設けることにより、第1のタンク20においてより一層安定した濃度調整を行うことができるようになる。

【0032】

さらに、第1のタンク20には、内部の液体燃料を攪拌してメタノール濃度を均一にするための攪拌機構を設けることが好ましい。この攪拌機構は、図2に示すように、第1のタンク20内に設けられた磁気攪拌羽根61と、これを第1のタンク20の外部から非接触状態で回転駆動させるための回転駆動機構62を備える。回転駆動機構62は、回転モータ621とこの回転モータ61に軸支された磁気回転部622とを備える。回転モータ621の駆動により回転された磁気回転部622は、磁氣的にカップリングされた磁気攪拌羽根61を回転させ、第1のタンク20内の液体燃料を攪拌させる。

【0033】

なお、第1のタンク20および第2の第2のタンク30内に設けられる送液機構部材は、耐食性コーティングが施されていることが好ましい。かかる耐食性コーティングは、PTFE、PFA、ポリエチレン(PE)等の有機高分子材料や

A 1 および A 1 合金等の金属材料で形成することができる。

【 0 0 3 4 】

操作に際し、まず、回転モータ 7 3 1 を駆動させることにより、第 2 のタンク 3 0 内の駆動部 7 2 が非接触で駆動される。この駆動により、第 2 のタンク 3 0 内に設けられた送液チューブ 7 1 は膨張・圧縮を繰り返し、第 2 のタンク 3 0 内に収容されている高濃度液体燃料（例えば、濃度 9 9 ～ 1 0 0 % 未満のメタノール液）が、第 1 のタンク 2 0 へ供給される。第 1 のタンク 2 0 では、回転モータ 6 2 1 を駆動させて攪拌羽根 6 1 を回転させる。この状態で希釈液タンク 4 0 から所定量の希釈液（水）を第 1 のタンク 2 0 内に導入する。第 1 のタンク 2 0 内の液体燃料は、攪拌羽根 6 1 により均一な濃度とされる。同時に、回転モータ 5 3 1 を駆動させることにより、第 1 のタンク 2 0 内の駆動部 5 2 が非接触で駆動される。この駆動により、第 1 のタンク 2 0 内に設けられた送液チューブ 5 1 は膨張・圧縮を繰り返し、第 1 のタンク 3 0 内に収容されている濃度調整液体燃料（例えば、濃度 6 % のメタノール水溶液）が、液体燃料電池本体 1 0 の燃料極側へ供給される。これとともに、図示しないブロワにより空気等の酸化剤ガスを液体燃料電池本体 1 0 の酸化剤ガス導入ポート 1 0 5 a から液体燃料電池本体 1 0 の酸化剤極側に供給する。こうして、それぞれの電極において、上に説明したような電極反応が生起し、かかる反応が起こる過程で取り出される電子が外部回路を流れることで発電が起こり、外部負荷を駆動することができる。

【 0 0 3 5 】

なお、第 1 のタンク 2 0 および第 2 のタンク 3 0 における送液機構は、例えば特開 2 0 0 1 - 9 3 5 5 1 号公報に開示されているような毛管力によるものでもよい。

【 0 0 3 6 】

なお、小型の液体燃料電池デバイスを想定した場合、第 1 のタンク 2 0 の容積は、1 8 m L ～ 4 8 m L であり、第 2 のタンクの容積は 9 m L ～ 2 7 m L であり得る。

【 0 0 3 7 】

以上説明した図 2 に示す液体燃料電池デバイスの駆動手順を説明する。まず、

弁V10を開き、希釈液タンク40から希釈液（水）を第1のタンク20に送る。ついで、回転駆動機構73を駆動させ、第2のタンク30内の高濃度メタノールを第1のタンク20へ送る。しかる後、回転駆動機構62の駆動により第1のタンク20内の磁気攪拌羽根61を駆動させ、第1のタンク20内の溶液を攪拌する。ついで、回転駆動機構53の駆動により、第1のタンク20内の濃度調整メタノール液を供給管104aを介して電池本体10に送る。こうして、図2に示す液体燃料電池デバイスの初期駆動が行われる。その後、希釈液タンク40からの第1のタンク20への希釈液の供給と第2のタンク30から第1のタンクへの高濃度メタノール液の供給を連続的または間欠的に行うとともに、第1のタンク20内の溶液を適宜攪拌しながら、電池本体による発電を行う。図2に示す液体燃料電池デバイスの駆動を停止し、長期保管するためには、順次、回転駆動機構53をオフにして第1のタンク20から電池本体10への濃度調整メタノール液の送液を停止し、回転駆動機構73をオフにして第2のタンク30から第1のタンク20への高濃度メタノールの送液を停止し、回転駆動機構62をオフにして第1のタンク20内の攪拌を停止し、弁V10を閉じて希釈液タンク40から第1のタンク20への希釈液の送液を停止する。

【0038】

次に、図3を参照して本発明の第2の実施の形態に係る液体燃料電池デバイスを説明する。図3において、図2と同様の要素には同様の符号を付して、その説明は省略する。図3に示す液体燃料電池デバイスは、第1のタンク20内へ導入する希釈液の供給機構が図2に示す液体燃料電池デバイスと異なる。図3に示す液体燃料電池デバイスは、希釈液（水）として、図2に示す液体燃料電池デバイスにおけるように別途設けられた希釈液タンク40に収容された希釈液（水）を初期駆動時のみ使用し、初期駆動後は、液体燃料電池本体10の酸化剤極側での電極反応により生成した水を利用するものである。すなわち、酸化剤極における電極反応で生成した液体反応生成物（水）を排出するための排出ポート104aには、排出された水を第1のタンク20内に導く導管L10が接続されている。導管L10には、気液分離膜801を備えた気液分離装置80が介挿されている。この気液分離装置80は、過剰の酸化剤ガスとともに排出される水を気液分離

膜 8 0 1 により分離し、その分離した水を導管 L 1 0 を通して第 1 のタンク 2 0 内に供給するものである。気液分離膜 8 0 1 により分離された酸化剤ガスは、排出導管 L 1 1 から系外に排出される。また、導管 L 1 1 には、これを通して第 1 のタンク 2 0 内に導入される水の量を調整するための流量調整弁 V 2 0 が設けられている。

【 0 0 3 9 】

次に、図 3 に示す液体燃料電池デバイスの駆動手順を説明する。まず、図 2 に示す液体燃料電池デバイスの場合と同様に、弁 V 1 0 を開き、希釈液タンク 4 0 から希釈液（水）を第 1 のタンク 2 0 に送る。ついで、回転駆動機構 7 3 を駆動させ、第 2 のタンク 3 0 内の高濃度メタノールを第 1 のタンク 2 0 へ送る。しかる後、回転駆動機構 6 2 の駆動により第 1 のタンク 2 0 内の磁気攪拌羽根 6 1 を駆動させ、第 1 のタンク 2 0 内の溶液を攪拌する。ついで、回転駆動機構 5 3 の駆動により、第 1 のタンク 2 0 内の濃度調整メタノール液を供給管 1 0 4 a を介して電池本体 1 0 に送る。こうして、図 3 に示す液体燃料電池デバイスの駆動が行われる。次に、電池本体 1 0 の駆動により発生した水は、気液分離装置 8 0 を介してライン L 1 0 を介して弁 V 2 0 の開放により第 1 のタンク 2 0 内に送られる。その後は、弁 V 1 0 を閉じて希釈液タンク 4 0 からの水の導入を停止し、第 1 のタンク 2 0 への水の供給はライン L 1 0 を介する、電池本体で発生する水により行う。こうして連続駆動が行える。

【 0 0 4 0 】

以上説明したように、本発明に係る液体燃料電池デバイスは、高濃度液体燃料を収容する第 2 のタンクから、濃度調整液体燃料を収容する第 1 のタンクへと高濃度液体燃料を供給し、これを第 1 のタンク内で希釈して使用することから、濃度調整液体燃料を収容するタンク（第 1 のタンク）だけを有する液体燃料電池デバイスに比べて、可使寿命化飛躍的に向上する。すなわち、濃度調整液体燃料を収容する第 1 のタンクだけを有する場合、その液体燃料電池デバイスの可使寿命は、第 1 のタンクに収容される濃度調整液体燃料の体積によって決定されるのに対し、高濃度液体燃料を収容する第 2 のタンクをさらに有する場合には、第 2 のタンクに収容された高濃度液体燃料の体積に、高濃度液体燃料の希釈倍率を乗じ

た体積に対応する可使寿命を享受することができるのである。従って、本発明に係る液体燃料電池デバイスは小型化しても従来とは比較とならないような長時間の連続発電が可能となる。また、第2のタンク内の高濃度液体燃料を使いきっても、その第2のタンクを新たな第2のタンクと交換すれば、さらに発電が可能となるので、さらに長期間の発電が可能となる。また、第1のタンク内の送液機構は、これと物理的に結合されていない外部駆動機構により駆動されるので、液シールを設けることなく液体燃料の漏洩を防止することができる。

【0041】

【実施例】

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明は、それら実施例により限定されるものではない。

【0042】

実施例1

図2に示した構成を有する小型液体燃料電池を、以下に示す要領で作製した。まず、通常の液相法により、カーボン粉末にPt-Ru系触媒を担持させた。このPt-Ru系触媒を担持したカーボン粉末をアルゴン-水素気流中で焼成して触媒を安定化させた。次に、得られた触媒粉末に樹脂バインダーの有機溶媒溶液を添加し、得られたペーストをカーボクロス上に塗布し、乾燥させて触媒層を形成し、燃料極を作製した。他方、通常の液相法により、カーボン粉末にPt系触媒を担持させ、上と同様に焼成した。得られた触媒粉末に樹脂バインダーの有機溶媒溶液を添加し、得られたペーストをカーボンペーパーに塗布し、乾燥させて触媒層を形成し、酸化剤極を作製した。

【0043】

以上のようにして作製した燃料極と酸化剤極をそれぞれ50mm×50mm角の片に切断し、それらの間に膜厚200μmの電解質膜（パーフルオロスルホン酸膜）を介挿した。この積層体を、135℃で15分間、100kg/cm²の圧力で一体化して膜-電極接合体（MEA）を得た。このMEAに燃料極側および酸化剤極側にそれぞれセパレータを設けて、図1に示す構造の液体燃料電池本体10を作製した。

【 0 0 4 4 】

この液体燃料電池本体の液体燃料導入ポート 1 0 4 a に第 1 のタンク 2 0 を接続し、この第 1 のタンク 2 0 に第 2 のタンク 3 0 を接続した。第 1 のタンク 2 0 および第 2 のタンク 3 0 は、それぞれ、逆止弁 (C V 1、C V 2) を接続した送液チューブ (5 1、7 1) と、送液チューブ駆動部 (5 2、7 2)、および駆動機構 (5 3、7 3) を備えるものであり、第 1 のタンク 3 0 には攪拌羽根 6 1 とその駆動機構 6 2 を設けた。他方、酸化剤導入ポート 1 0 5 a には、酸化剤である空気の送風ポンプを接続した。こうして、図 2 に示す構造の小型液体燃料電池デバイスを作製した。

【 0 0 4 5 】

この小型液体燃料電池デバイスを以下のように運転した。

【 0 0 4 6 】

まず、第 1 の液体燃料タンク 2 0 内のメタノール濃度が 2 M になるように第 2 のタンク 3 0 から濃度 9 9 % のメタノール液と水タンク 4 0 から水を第 1 の液体燃料タンク 2 0 に供給した。このように濃度調整されたメタノール水溶液を電池本体の燃料極側に 2 m L / 分の流量で供給した。次に、酸化剤ガス側に設けた送風ポンプにより酸化剤ガスである空気を 1 0 0 m L / 分の流量で供給した。なお、第 2 のタンクからのメタノール液の供給は、第 2 のタンク内のメタノール水溶液の濃度調整を図るため、連続的ばかりでなく、間欠的にも行った。

【 0 0 4 7 】

次に、この小型液体燃料電池デバイスに電子負荷装置を接続し、発電温度 6 0 °C で 0 ~ 2 0 0 m A / c m ² の範囲での発電特性を確認した。結果を図 4 に示す。

【 0 0 4 8 】

図 4 に示すように、この液体燃料電池デバイスは電流密度約 2 0 0 m A / c m ² まで負荷を取ることが可能であり、最高出力は 4 0 m w / c m ² を示した。また、図 4 には示していないが、この液体燃料電池デバイスは、およそ 1 0 時間経過した後も安定した電圧を維持しており、小型液体燃料電池デバイスとして信頼性の高いものであることが確認できた。なお、この燃料電池デバイスでは、その動

作中、液体燃料の漏洩は観察されなかった。

【0049】

実施例 2

逆止弁 CV 1 および CV 2 を用いなかった以外は、実施例 1 と同様にして液体燃料電池デバイスを作製した。この液体燃料電池デバイスについて、実施例 1 と同様の方法で出力を取り出した際の出力変化を測定した。その結果を図 4 に併記する。実施例 1 と比較して高電流側で出力特性カーブに若干の変動が確認されたが、本実施例の液体燃料電池デバイスも良好な発電特性を示すことがわかった。なお、上記変動は発電時に燃料極側に生じた二酸化炭素ガスが液体燃料タンクに逆流することにより液体燃料供給が妨げられたことにより生じたと考えられる。なお、この燃料電池デバイスでは、その動作中、液体燃料の漏洩は観察されなかった。

【0050】

実施例 3

実施例 1 と同様にして液体燃料電池デバイスを作製した。この液体燃料電池デバイスにおいて、第 1 のタンクの容積は、190 mL であり、第 2 のタンクの容積は、95 mL であった。この液体燃料電池デバイスを約 150 mA/cm^2 の電流密度で実施例 1 と同様にして駆動させたところ、図 5 に示すように、ほぼ 100 時間までの時間にわたって約 40 mW/cm^2 の出力を安定に得た。なお、この燃料電池デバイスでは、その動作中、液体燃料の漏洩は観察されなかった。

【0051】

比較例 1

第 2 のタンクを用いないで、実施例 3 と同様の操作を行ったところ、図 5 に併記するように、ほぼ 6 時間後には出力が低下した。

【0052】

【発明の効果】

以上述べたように、本発明によれば、小型化しても比較的長時間の連続発電が可能であり、液シールを設けることなく液体燃料の漏洩を防止し得る液体燃料電池デバイスが提供される。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の一実施の形態に係わる液体燃料電池デバイスの構成を概略的に示す図。

【図 2】

本発明の種々の態様において使用され得る液体燃料電池本体の基本的構造を示す概略断面図。

【図 3】

本発明の他の実施の形態に係わる液体燃料電池デバイスの構成を概略的に示す図。

【図 4】

実施例 1 および 2 で作製した液体燃料電池デバイスの発電特性をそれぞれ示すグラフ。

【図 5】

実施例 3 および比較例 1 で作製した液体燃料電池デバイスの可使寿命を示すグラフ。

【符号の説明】

- 1 0 …燃料電池本体
- 1 0 1 …電解質層
- 1 0 2 …燃料極
- 1 0 2 a …導電性支持体
- 1 0 2 b …触媒層
- 1 0 3 …酸化剤極
- 1 0 3 a …導電性支持体
- 1 0 3 b …触媒層
- 1 0 4, 1 0 5 …セパレータ
- 1 0 4 a …液体燃料の導入ポート
- 1 0 4 b …液体燃料の反応生成物の排出ポート
- 1 0 5 a …酸化剤ガスの導入ポート
- 1 0 5 b …酸化剤ガスの反応生成物の排出ポート

2 0 … 第 1 のタンク（濃度調整液体燃料タンク）

3 0 … 第 2 のタンク（高濃度液体燃料タンク）

4 0 … 希釈液タンク

5 1, 7 1 … 送液チューブ

5 2, 7 2 … 送液チューブ駆動部

5 3, 7 3 … 回転駆動機構

C V 1, C V 2 … 逆止弁

L 1 0 … 酸化剤極における電極反応で生成した液体反応生成物（水）を第 1 の
タンク内に導く導管

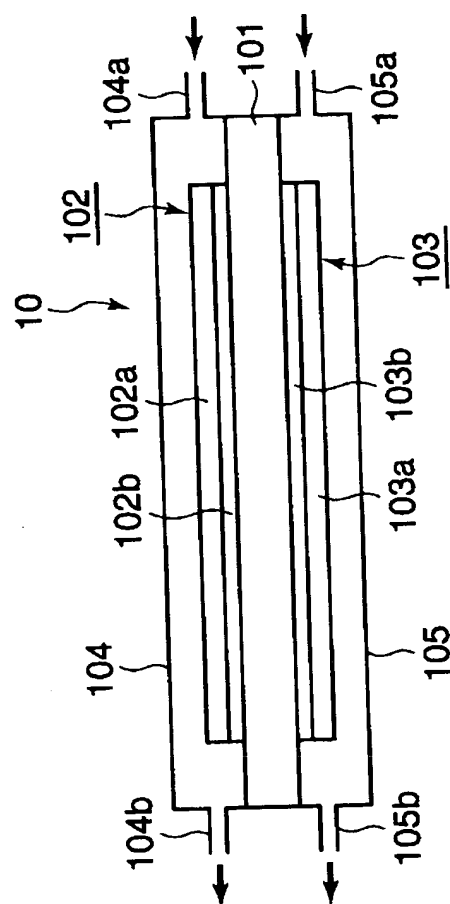
8 0 … 気液分離装置

8 0 1 … 気液分離膜

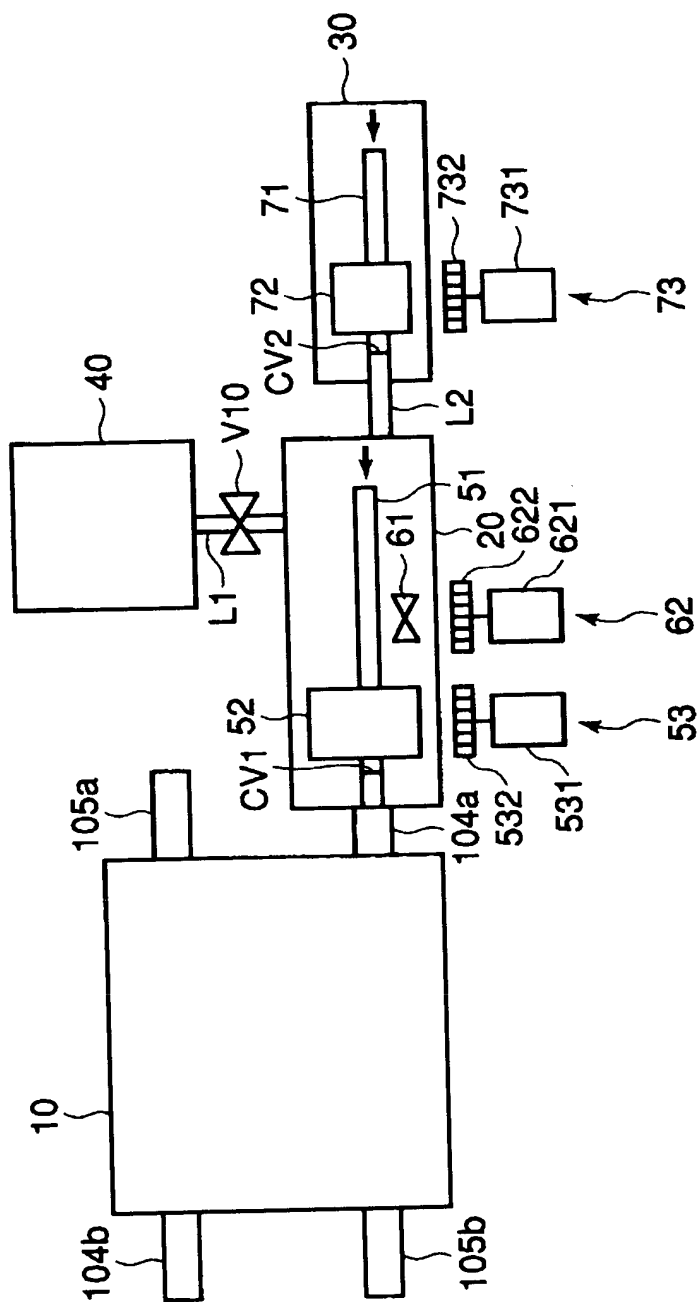
【書類名】

図面

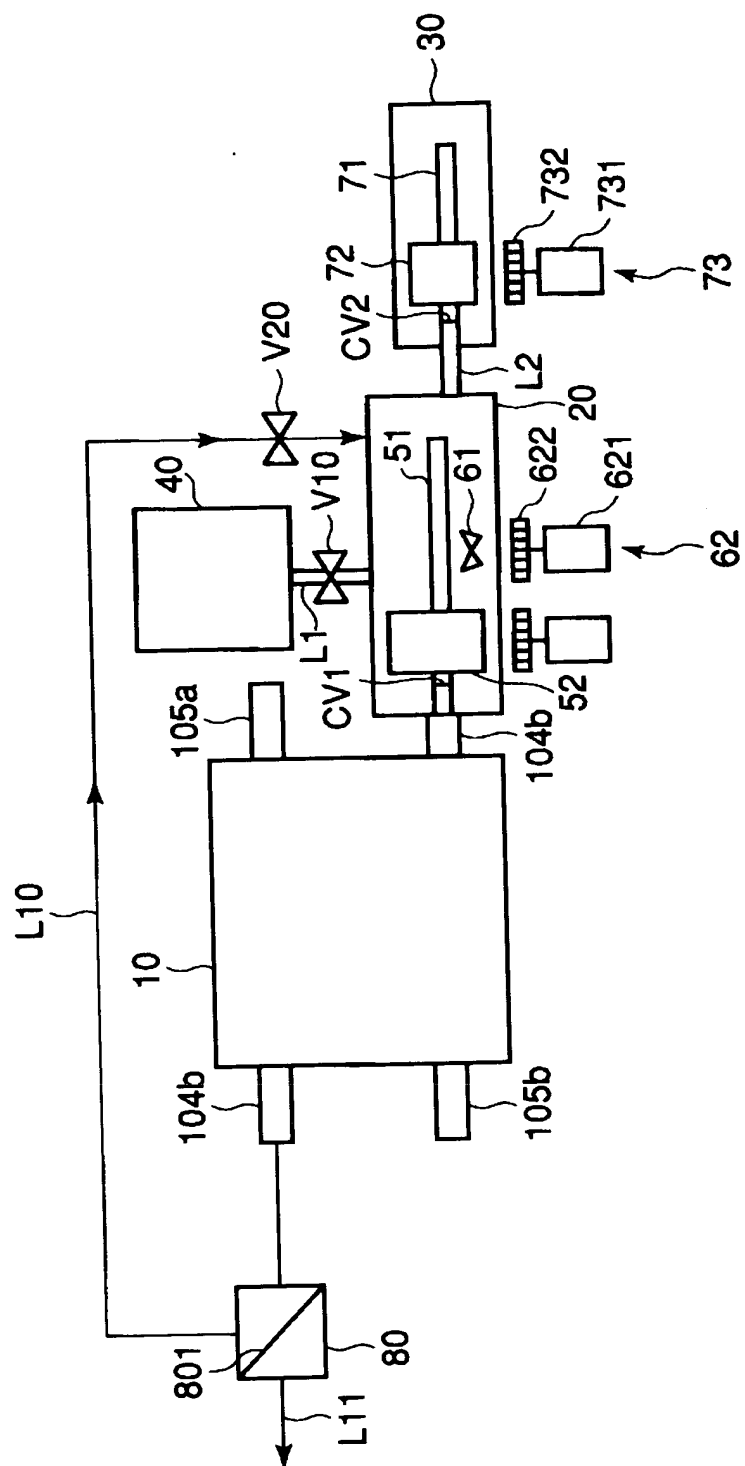
【図 1】



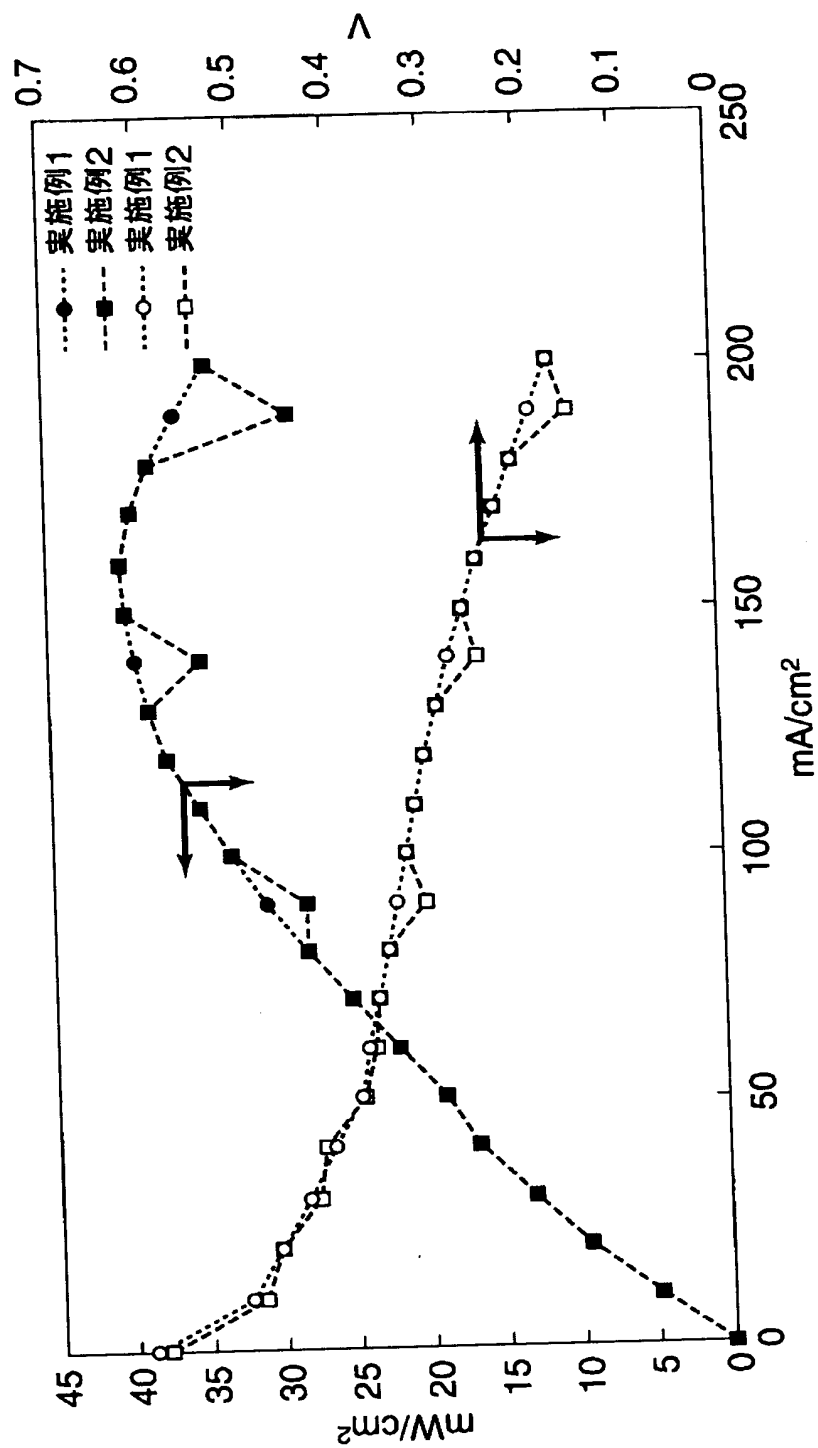
【図 2】



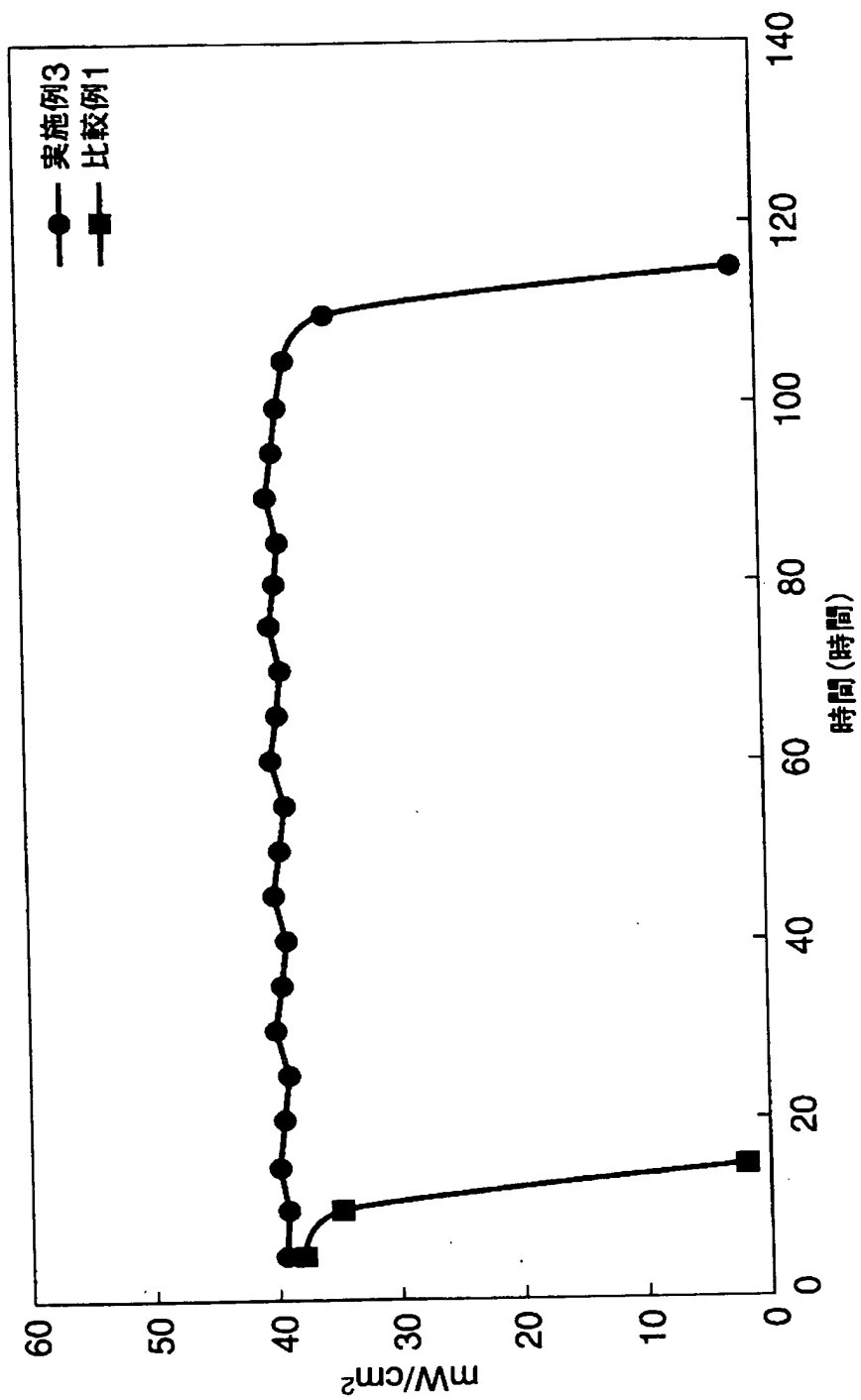
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 小型化しても比較的長時間の連続発電が可能な液体燃料電池デバイスを提供する。

【解決手段】 燃料極、この燃料極に対向して配置された酸化剤極、および前記燃料極と酸化剤極により挟持された電解質層を備える液体燃料電池本体（１０）と、前記燃料極に液体燃料を供給する液体燃料供給システムを具備し、該液体燃料供給システムは、濃度が調整された液体燃料を収容しこれを前記燃料極側に供給する第１のタンク（２０）と、高濃度液体燃料を収容しこれを前記第１のタンク（２０）に供給する第２のタンク（３０）を備えることを特徴とする液体燃料電池デバイス。

【選択図】 図２

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003078]

| | |
|----------|----------------|
| 1. 変更年月日 | 2001年 7月 2日 |
| [変更理由] | 住所変更 |
| 住 所 | 東京都港区芝浦一丁目1番1号 |
| 氏 名 | 株式会社東芝 |